#### (19)日本国特許庁 (JP)

## (12)公開特許公報 (A)

## (11)特許出願公開番号

# 特開2001-172520

(P2001-172520A) (43)公開日 平成13年6月26日(2001.6.26)

(51) at.Cl. <sup>7</sup> 識別	別記号	FΙ		テーマコート	(参考)
C09B 67/20		CO9B 67/20	L		
			F		
57/00		57/00	γ		
67/46		67/46	В		

		審査請求	未請求	請求項の数 5	OL	(全7頁)	
(21)出願番号	特願平11-360113	(71)出願人	000222118 東洋インキ製造株式会社				
(22)出願日	平成11年12月20日(1999.12.20)	(72)発明者	東京都中央区京橋2丁目3番13号 金田 潤 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内			<del>]</del>	
		(72)発明者	加藤 幹也 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋イ	・ 東洋イ			
			ンキ製造				

#### (54) 【発明の名称】 顔料分散剤、顔料組成物および顔料分散体

#### (57)【要約】

【課題】顔料、特にベンズイミダゾロン系顔料の非水性 ビヒクル中の分散に対して有効な顔料分散剤を提供する ものである。

【解决手段】下記一般式(1)で示されるベンズイミダ ゾロン系顔料誘導体からなる顔料分散剤。

一般式(1)

【化1】

$$X^2$$
 $X^3$ 
 $X^4$ 
 $X^5$ 
 $X^5$ 
 $X^6$ 
 $X^6$ 

式中、R' は-CH(COCH, )-またはナフチレン 基を表し、X'  $\sim X'$  は、-SO, Hもしくはその塩、-COOHもしくはその塩、-H、-CI、-Br、-F、-CF, 、-CH, 、-NO, 、-OH、-OCH, 、-OC, H<sub>6</sub>、-COOR, 、-CONHC, H<sub>6</sub> CONH<sub>1</sub>、-CONHC, H<sub>6</sub> 、-SO, NHR, 等であ

り、一般式(2)で表される基を表し(R<sup>1</sup> は炭素数1~4のアルキル基を表す。)、一般式(2) 【化2】

 $X' \sim X'$  の少なくとも1個は-SO, Hもしくはその 塩または-COOHもしくはその塩を表す。

BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(1)で示されるベンズイミダゾロン系顔料誘導体からなる顔料分散剤。

一般式(1) 【化1】

$$X^2$$
 $X^3$ 
 $X^4$ 
 $X^5$ 
 $X^5$ 
 $X^5$ 
 $X^6$ 
 $X^6$ 
 $X^6$ 
 $X^6$ 
 $X^6$ 
 $X^6$ 
 $X^7$ 
 $X^8$ 
 $X^8$ 
 $X^8$ 
 $X^8$ 
 $X^8$ 
 $X^8$ 
 $X^8$ 

式中、 $R^{l}$  は-CH (COCH, ) - またはナフチレン 基を表し、 $X^{l}$   $\sim$   $X^{l}$  は、それぞれ独立に- SO, Hも しくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、- COOHもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、<math>-H, -Cl, -Br, -F, -CF, -CH, -NO, -OH, -OCH, -OC, H, -CONHC, H, -CONHC, H, -CONHC, H, -CONHC, H, -SO,  $NHR^{l}$ , -R, -R

【化2】

式 (2) 中、 $X^{i} \sim X^{i}$ は、それぞれ独立に-SO, Hも 30 しくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、-COOHもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、-H、-CI、-Br、-F、-CF, 、-CH, 、-NO, 、-OH、-OCH, 、-OC, H, 、-CONHC, H, CONH, 、-CONHC, H, 、-SO, NHR を表し(R は炭素数 1~4のアルキル基を表す。)、X' ~X' の少なくとも1個は-SO, Hもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、または-COOHもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩を表す(但し、X'が-40COH、 $X^{i}$  ~ $X^{i}$  が-Hかつ $X^{i}$  が-CH (COCH,) -である場合を除く。)。

【請求項2】  $X' \sim X'$  の少なくとも1個が-SO, H の有機アンモニウム塩または-COOHの有機アンモニウム塩である請求項1記載の顔料分散剤。

【請求項3】 顔料と請求項1または2記載の顔料分散 剤とからなる顔料組成物。 【請求項4】 顔料がベンズイミダゾロン系顔料である 請求項3記載の顔料組成物。

【請求項5】 請求項3または4記載の顔料組成物とビ ヒクルとからなる顔料分散体。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、使用適性、特に非 集合性、非結晶性、流動性に優れた顔料分散体を提供す る顔料分散剤および顔料組成物に関する。

20 [0002]

【従来の技術】顔料の微細な粒子は、オフセットインキ、グラビアインキおよび塗料のような非水性ビヒクルに分散する場合、安定な分散体を得ることが難しく、製造作業上および得られる製品の価値に重要な影響を及ぼす種々の問題を引き起こすことが知られている。例えば、微細な粒子からなる顔料を含む分散体は、往々にして高粘度を示し製品の分散機からの取り出し、輸送が困難となるばかりでなく、更に悪い場合は貯蔵中にゲル化を起こし使用困難となることがある。また、異種の顔料を混合して使用する場合、凝集による色分れや、沈殿などの現象により展色物において色むらや著しい着色力の低下となって現れることがある。以上のような問題点に対して、顔料に種々の置換基を導入した顔料分散剤が知られているが、黄色系顔料、特にベンズイミダゾロン系顔料に対しては有効な顔料分散剤は知られていなかった。

[0003]

【発明が解決しようとする課題】本発明は、顔料、特にベンズイミダゾロン系顔料の非水性ビヒクル中の分散に40 対して有効な顔料分散剤を提供するものである。

[0004]

【課題を解決するための手段】本発明は、下記一般式 (1)で示されるベンズイミダゾロン系顔料誘導体から なる顔料分散剤に関する。

一般式(1)

【化3】

$$X^{2}$$

$$X^{3}$$

$$X^{4}$$

$$X^{5}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{2}$$

$$X^{1}$$

$$X^{2}$$

$$X^{3}$$

$$X^{4}$$

$$X^{5}$$

$$X^{5}$$

$$X^{6}$$

$$X^{7}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{2}$$

$$X^{1}$$

$$X^{2}$$

$$X^{3}$$

$$X^{4}$$

$$X^{5}$$

$$X^{5}$$

$$X^{7}$$

$$X^{7}$$

$$X^{1}$$

$$X^{1}$$

$$X^{2}$$

$$X^{3}$$

$$X^{4}$$

$$X^{5}$$

$$X^{7}$$

$$X^{7}$$

$$X^{1}$$

$$X^{2}$$

$$X^{3}$$

$$X^{4}$$

$$X^{5}$$

$$X^{7}$$

$$X^{7$$

式中、 $R^1$  は-CH (COCH, ) - またはナフチレン 基を表し、 $X^1$   $\sim$   $X^5$  は、それぞれ独立に-SO, Hも しくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、- 10 COOHもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、<math>-H、-Cl、-Br、-F、-CF, 、-CH, 、-NO, 、-OH、-OCH, 、-OC, H, 、-CONHC, H, CONH, 、-CONHC, H, CONH, -CONHC, H, -SO, NHR, -B, -B,

【化4】

式(2)中、 $X^{i} \sim X^{o}$ は、それぞれ独立に-SO, Hもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、-COOHもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩、-H、-CI、-Br、-F、-CF, 、-C 30 H, 、-NO, 、-OH、-OCH, 、-OC, H, 、-CONHC, H, CONH, 、-CONHC, H, 、-SO, NHR'を表し(R'は炭素数1~4のアルキル基を表す。)、 $X^{i} \sim X^{o}$ の少なくとも1個は-SO, Hもしくはそのアルカリ金属塩もしくはア

ンモニウム塩、または-COOHもしくはそのアルカリ金属塩もしくはアンモニウム塩を表す(但し、X'が-COOH、X'~X'が-HかつR'が-CH(COCH,)-である場合を除く。)。更に本発明は、顔料と上記顔料分散剤とからなる顔料組成物に関する。更に本発明は、上記顔料組成物とビヒクルとからなる顔料分散体に関する。X'が-COOH、X'~X'が水素原子、R'が-CH(COCH3)-である化合物は、PY151の顔料として既に公知であり、この化合物は水および溶剤への溶解性が極めて低く、顔料分散剤としての適性を示さない。

[0005]

20 【発明の実施の形態】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体の製造方法としては、アゾカップリングまたはベンズイミダゾロン系顔料のスルホン化による方法があり、スルホン化剤として発煙硫酸、濃硫酸、クロロ硫酸などを用いて行うのが一般的である。本発明で使用されるベンズイミダゾロン系顔料誘導体の代表例として下記にいくつか示した。

【0006】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(a) 【化5】

【0007】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(b) 【化6】

【0008】ペンズイミダゾロン系顔料誘導体(c) 【化7】

【0009】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体 (d) 【化8】

【0010】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(e) 【化9】

【0011】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体 (f) 【化10】

SO<sub>3</sub>Na

【0013】ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(h) 【化12】

【0015】ペンズイミダゾロン系顔料誘導体(j) 【化14】

[0016]

[0017]

【0018】ペンズイミダゾロン系顔料誘導体(k) 【化15】

【0019】本発明の顔料組成物は、一般に市販されて いるほとんどすべての顔料に効果的であるが、特に、ベ ンズイミダゾロン系顔料の分散に効果を発揮する。本発 50 料がある。

40 明に使用できる顔料としては、例えば、ベンズイミダゾ ロン系顔料、可溶性及び不溶性アゾ顔料、縮合アゾ顔料 等のアゾ系顔料、フタロシアニン系顔料、キナクリドン 系顔料、イソインドリノン系顔料、イソインドリン系顔 料、キノフタロン系顔料、ペリレン・ペリノン系顔料、 ジオキサジン系顔料、アントラキノン系顔料、ジアンス ラキノニル系顔料、アンスラピリミジン系顔料、アンサ ンスロン系顔料、インダンスロン系顔料、フラバンスロ ン系顔料、ピランスロン系顔料、ジケトピロロピロール 系顔料、建染染料系顔料、塩基性染料系顔料等の有機顔

【0020】ベンズイミダゾロン系顔料としては、C. ピグメントイエロー120、151、154、15 6、175、180、181、194、ピグメントオレ ンジ36、60、62、72、ピグメントレッド17 1、175、176、185、208、ピグメントバイ オレット32、ピグメントブラウン25などがある。

【0021】本発明の有機アンモニウム塩タイプの顔料 分散剤を形成するために使用されるアミン成分として は、第1級アミン、第2級アミン、第3級アミン、第4 級アミンがある。具体的に、第1級アミンはエチルアミ 10 ン、プロピルアミン、イソプロピルアミン、プチルアミ ン、イソプチルアミン、sec-プチルアミン、エタノ ールアミン、イソプロパノールアミン、オクチルアミ ン、ドデシルアミン、ラウリルアミン、ステアリルアミ ン、オレイルアミンなど、第2級アミンはジメチルアミ ン、ジエチルアミン、ジプロピルアミン、ジエタノール アミン、ジステアリルアミンなど、第3級アミンはトリ メチルアミン、トリエチルアミン、トリエタノールアミ ン、トリイソプロパノールアミン、ジメチルエタノール アミン、ジエチルエタノールアミン、n-ブチルジエタ 20 ノールアミン、N, N-ジメチル-1, 3-ジアミノプ ロパン、N, N-ジエチル-1, 3-ジアミノプロパ ン、ジメチルオクチルアミン、ジメチルデシルアミン、 ジメチルラウリルアミン、ジメチルミリスチルアミン、 ジメチルパルミチルアミン、ジメチルステアリルアミ ン、ジメチルベヘニルアミン、ジラウリルモノメチルア ミン、トリオクチルアミンなど、第4級アミンはジメチ ルジドデシルアンモニウムクロライド、ジメチルジオレ イルアンモニウムクロライド、トリメチルステアリルア ンモニウムクロライドなどが挙げられる。

【0022】本発明の顔料組成物の製造方法としては下 記の方法がある。

- 1. 顔料と顔料分散剤を予め混合して得られる顔料組成 物を非水系ピヒクルなどに添加して分散する。
- 2. 非水系ピヒクルなどに顔料と顔料分散剤を別々に添 加して分散する。
- 3. 非水系ビヒクルなどに顔料と顔料分散剤を予め別々 に分散し得られた分散体を混合する。この場合、顔料分 散剤を溶媒のみで分散しても良い。
- 4. 非水系ピヒクルなどに顔料を分散したあと、得られ 40 た分散体に顔料分散剤を添加する。

【0023】上記1で示した顔料組成物における顔料分 散剤の好ましい配合量は、顔料100重量部に対して、 0. 1~40重量部、さらに好ましくは5~20重量部 である。顔料分散剤の配合量が上記数値より少ないと、 充分な顔料分散効果が得られず、また、上記数値より多 く配合しても用いた分の効果が得られない。

【0024】顔料組成物は、顔料粉末と顔料分散剤の粉 末を単に混合して調製しても、充分目的とする効果が得 られる。しかし、ニーダー、ロール、アトライター、ス 50 ーパーミル等の各種粉砕機により機械的に混合するか、 顔料の水または有機溶剤によるサスペンジョン系に顔料 分散剤を含む溶液を添加し、顔料表面に顔料分散剤を吸 着させるか、硫酸等の強い溶解力を持つ溶媒に有機顔料 と顔料分散剤を共溶解して水等の貧溶媒により共沈させ る等の緊密な混合法を行えばさらに良好な結果を得るこ とができる。

【0025】また、上記2~4で示した本発明の顔料分 散剤の使用においては、水系ビヒクルまたは水、非水系 ピヒクルまたは溶剤中への顔料あるいは顔料分散剤の分 散、これらの混合等に分散機械としてディゾルバー、ハ イスピードミキサー、ホモミキサー、ニーダー、ロール ミル、サンドミル、アトライター等を使用することによ り顔料の良好な分散ができる。

【0026】本発明の顔料組成物が好適に用いられるピ ヒクルとしては、ライムロジンワニス、ポリアミド樹脂 ワニスまたは塩化ビニル樹脂ワニス等のグラビアイン キ、ニトロセルロースラッカー、アミノアルキッド樹脂 の常乾もしくは焼き付け塗料、ウレタン系樹脂塗料、ア クリル樹脂塗料等が挙げられる。なお、本発明の顔料組 成物の使用は非水系ビヒクルだけに限定されず、その他 の印刷インキや塗料、プラスチックの着色、さらには水 性インキ、水性塗料、エマルション型インキ、エマルシ ョン型塗料においても、分散効果に優れ、着色力のある 着色物が得られる。

[0027]

【実施例】以下に、実施例により本発明をさらに詳細に 説明する。例中、「部」とは「重量部」を表す。 製造例1 (カップリング反応によるベンズイミダゾロン 系顔料誘導体の製造)

水200部に水酸化ナトリウム8.0部を溶解させ、3 -アミノフタル酸18.1部を加えた。これに濃塩酸5 0部を添加し、0℃以下に冷却した。次に、亜硝酸ナト リウム7. 2部を水20部に溶解させて反応系に滴下 し、5℃以下で1時間撹拌した。次に、水1000部に 水酸化ナトリウム10. 4部を溶解させ、アセトアセチ ルベンズイミダゾール23.3部を添加した。これに8 5%酢酸25.5部を添加し、上記で調整したジアゾニ ウム塩溶液を滴下し室温で1時間撹拌した。沈殿物をろ 過、水洗、乾燥し、ベンズイミダゾロン系顔料誘導体 (a) 43部を製造した。

製造例2(製造例1のドデシルアンモニウム塩の製造) 水200部に水酸化ナトリウム2.0部を溶解させ、製 造例1記載の顔料誘導体10部を添加しpH9.0にし た。次にドデシルアミン15部を添加したあと沈殿物を ろ過、水洗、乾燥し、ンズイミダゾロン系顔料誘導体 (b) 19部を製造した。

製造例3(スルホン化反応によるベンズイミダゾロン系 顔料誘導体の製造)

顔料 (PY180) 50部を95重量%硫酸750部に

した。

実施例1

ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(g)7.0部を製造

ペンズイミダゾロン系顔料(PY156)およびベンズ

イミダゾロン系顔料誘導体(a)を用いて下記処方によ

り塗料を作成した。塗料は、下記の配合のうち分散後添

加する混合ワニス以外の成分を容器に入れ、スチールボ

ールを加えてペイントシェイカーで分散した後、混合ワ

10℃以下で添加した。次に、昇温させ15℃で2時間 撹拌したあと、氷水に投入し析出させた。沈殿物をろ 過、食塩水で洗浄、乾燥し、ベンズイミダゾロン系顔料 誘導体(f)53部を製造した。

製造例4(製造例3のジメチルジドデシルアンモニウム 塩の製造)

水200部に水酸化ナトリウム0.5部を溶解させ、製 造例1記載の顔料誘導体5部を添加しpH9.0にし た。次にジメチルジドデシルアンモニウムクロライド

3. 5部を添加したあと沈殿物をろ過、水洗、乾燥し、 10 ニスを添加して作成した。

9.5部

0.5部

26.4部

メラミン樹脂系ワニス (不揮発分50%) 13.6部

シンナー(キシレン/n-プタノール=8/2)

分散後添加する混合ワニス(アルキド樹脂系ワニス/メラミン樹脂系ワニス

=7/3 (固形分))

得られた塗料を下記の方法により評価したところ、良好 な流動性と途膜の光沢を示した。

【0028】 塗料粘度の評価法 得られた塗料の粘度をB型粘度計にて評価した(測定温 度25℃、回転数6(r.p.m)および60(r.p.m))。

【0029】途膜光沢の評価法

得られた塗料を最終塗料粘度がフォードカップ4で23 秒になるようにシンナーで調製し、エアースプレーガン でプリキ板に吹き付けた後焼き付け、グロスメーターで 20° グロスを測定し、塗面の鮮映性を評価した。

【0030】比較例1

実施例1においてペンズイミダゾロン系顔料誘導体 (a) を添加せず、顔料を10部とした塗料を作成し た。得られた塗料は実施例1に比較して流動性と光沢に

顔料 (PR171)

ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(i)

オイルフリーポリエステル樹脂系ワニス(不揮発分60%)

26. 4部

メラミン樹脂系ワニス(不揮発分50%)

スワゾール 20.0部

ミン樹脂系ワニス=7/3(固形分))

48.3部

【0033】 実施例3

ベンズイミダゾロン系顔料(PY180)およびベンズ イミダゾロン系顔料誘導体(f)を用いて下記処方によ り塗料を作成した。塗料は、下記の配合のうち分散後添 加する樹脂以外の成分を容器に入れ、3mmφアルミナ ピーズを加えてペイントコンディショナーで分散したの ち、下記のアクリル樹脂37.5部とメチル化メラミン 樹脂(商品名サイメル303 三井サイテック製)4. 3部を添加して作成した。

9.9部

【0032】比較例2

た。

(i) を添加せず、顔料を10部とした塗料を作成し た。得られた塗料は実施例1に比較して流動性と光沢に 劣るものであった。実施例2においてベンズイミダゾロ ン系顔料誘導体(i)の代わりにベンズイミダゾロン系 顔料誘導体(j)、(h)を用いたところベンズイミダ ゾロン系顔料誘導体(i)と同等の良好な結果が得られ

実施例2においてベンズイミダゾロン系顔料誘導体

顔料 (PY180)

顔料 (PY156) ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(a)

アルキド樹脂系ワニス (不揮発分60%)

20.0部

48.3部

劣るものであった。実施例1においてベンズイミダゾロ 20 ン系顔料誘導体(a)の代わりにベンズイミダゾロン系 顔料誘導体(b)、(c)(d)、(e)を用いたとこ ろペンズイミダゾロン系顔料誘導体(i)と同等の良好 な結果が得られた。

【0031】実施例2

ベンズイミダゾロン系顔料(PR171)およびベンズ イミダゾロン系顔料誘導体(i)を用いて下記処方によ り塗料を作成した。塗料は、下記の配合のうち分散後添 加する混合ワニス以外の成分を容器に入れ、スチールボ ールを加えてペイントシェイカーで分散したのち、混合 30 ワニスを添加して作成した。得られた塗料を実施例1と 同様にして評価したところ良好な流動性と途膜の光沢を 示した。

9.5部

0.5部

13.6部

分散後添加する混合ワニス(オイルフリーポリエステル樹脂系ワニス/メラ

11

ベンズイミダゾロン系顔料誘導体(f)

0.1部

アクリル樹脂溶液(重量平均分子量25000、酸価60、モノマー組成( 重量比) アクリル酸/ジメチルアミノエチルメタクリレート/アクリル酸エチル /メタクリル酸メチル/酢酸ビニル=7.7/15/37.3/30/10(固

形分20%))

イオン交換水

得られた塗料を下記の方法により評価したところ、良好 な流動性と途膜の光沢を示した。

【0034】 塗膜光沢の評価法

得られた水性塗料を4ミルのフィルムアプルケーターで 10 と同等の良好な結果が得られた。 PETフィルム上に展色し、140℃で30分間焼き付 け、デジタル変角光沢計20°グロスを測定し、塗面の 鮮映性を評価した。

【0035】比較例3

実施例3においてベンズイミダゾロン系顔料誘導体

(f) を添加せず、顔料を10部とした塗料を作成し た。得られた塗料は実施例3に比較して流動性と光沢に 劣るものであった。

【0036】実施例3においてベンズイミダゾロン系顔

顔料 (PY175)

ペンズイミダゾロン系顔料誘導体(k)

オイルフリーポリエステル樹脂系ワニス(不揮発分60%)

26.4部

メラミン樹脂系ワニス (不揮発分50%)

スワゾール

分散後添加する混合ワニス(オイルフリーポリエステル樹脂系ワニス/メラ

ミン樹脂系ワニス=7/3 (固形分))

【0038】比較例4

実施例4においてペンズイミダゾロン系顔料誘導体

(k)の代わりに顔料 (PY151)を添加し、顔料 (PY175)を10部とした塗料を作成した。得られ た塗料は実施例4に比較して流動性と光沢に劣るもので あった。

比較例5

実施例4においてベンズイミダゾロン系顔料誘導体を添 加せず、顔料(PY151)を10部とした塗料を作成 12.5部

20.0部

料誘導体(f)の代わりにベンズイミダゾロン系顔料誘 導体(a)、(b)、(c)、(d)、(e)、(g) を用いたところベンズイミダゾロン系顔料誘導体(f)

【0037】実施例4

ベンズイミダゾロン系顔料(PY175)およびベンズ イミダゾロン系顔料誘導体(k))を用いて下記処方に より塗料を作成した。塗料は、下記の配合のうち分散後 添加する混合ワニス以外の成分を容器に入れ、スチール ボールを加えてペイントシェイカーで分散したのち、混 合ワニスを添加して作成した。得られた塗料を実施例1 と同様にして評価したところ良好な流動性と途膜の光沢 を示した。

9.5部

0.5部

13.6部

20.0部

48.3部

した。得られた塗料は比較例4に比較して流動性と光沢 に劣るものであった。

[0039]

【発明の効果】本発明の顔料組成物は各種ビヒクルに対 して良好な分散性を示し、分散体の粘度の低下、構造粘 性の減少等の良好な流動性を示すと同時に、色別れ、結 晶の変化等の問題がないインキや塗料が得られる。その 結果、印刷物あるいは塗膜の光沢が良く、従って美麗な 製品を得ることができる。

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ YREFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
□ OTHER:

## IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.